

VARIATIONEN IN DER DEPOSITION VON Si-32

Inauguraldissertation

der philosophisch-naturwissenschaftlichen Fakultät
der Universität Bern zur Erlangung der Doktorwürde,
vorgelegt von

SIMON AEGERTER
aus Gurzelen

Von der philosophisch-naturwissenschaftlichen Fakultät
auf Grund des Gutachtens von Herrn Prof.Dr.H. Oeschger
und auf Antrag von Herrn Prof. Dr. J. Geiss angenommen.

Bern, den 9. Juni 1966

Der Dekan:

sig. Prof.Dr.W.Nabholz

VARIATIONEN IN DER DEPOSITION VON Si-32

Inauguraldissertation

der philosophisch-naturwissenschaftlichen Fakultät
der Universität Bern zur Erlangung der Doktorwürde,
vorgelegt von

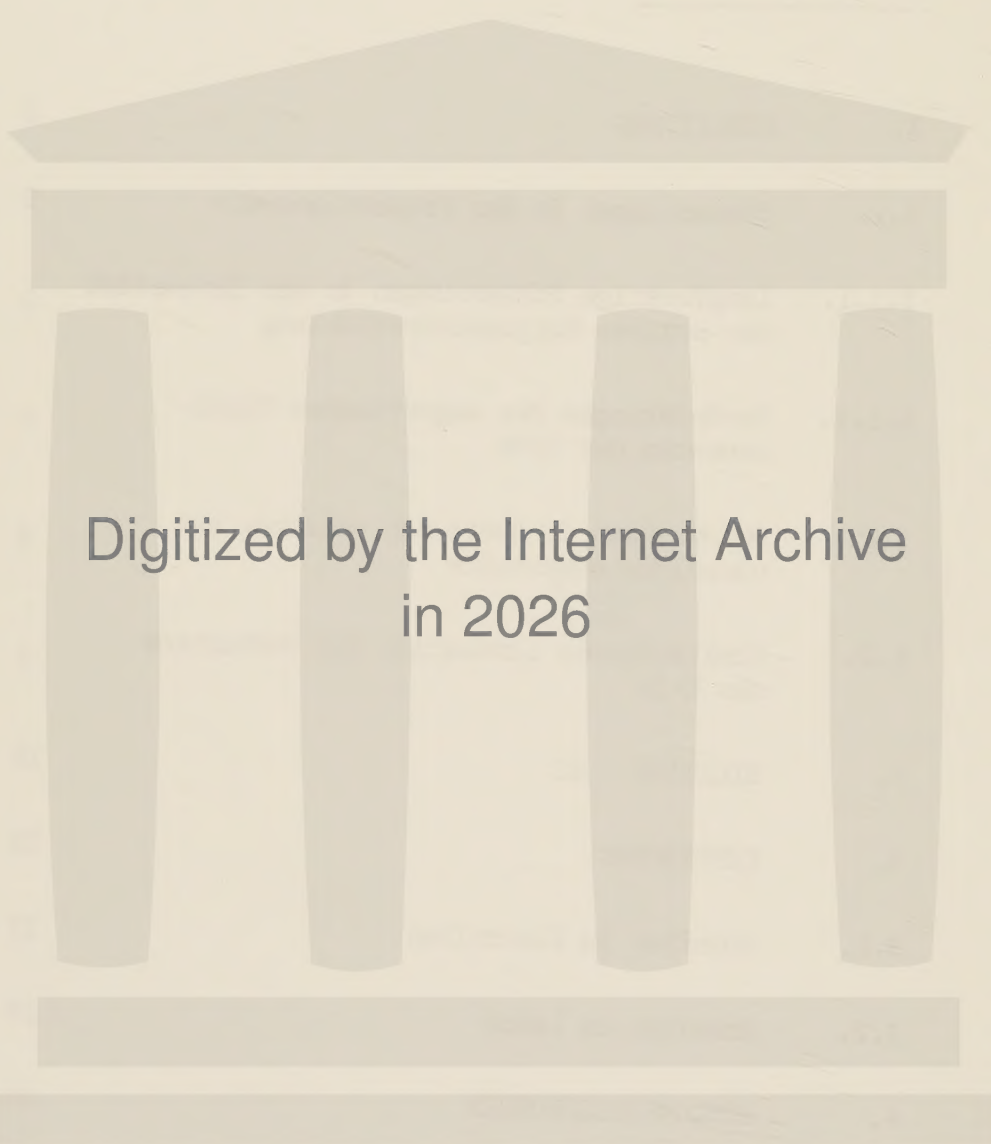
SIMON AEGERTER
aus Gurzelen

Von der philosophisch-naturwissenschaftlichen Fakultät
auf Grund des Gutachtens von Herrn Prof.Dr.H. Oeschger
und auf Antrag von Herrn Prof. Dr. J. Geiss angenommen.

Bern, den 9. Juni 1966

Der Dekan:

sig. Prof.Dr.W.Nabholz



Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41546623_0049

1. EINLEITUNG

Eine der wesentlichen Voraussetzungen für die Brauchbarkeit des C-14 für Altersbestimmungen ist die Konstanz des C-14/C-12 - Verhältnisses im atmosphärischen CO₂. Eine grosse Anzahl von Messungen wurde gemacht, um zu prüfen, ob diese Voraussetzung erfüllt ist. Zu diesem Zwecke wurde der C-14-Gehalt in Proben bekannten Alters bestimmt. Bei diesen Proben handelte es sich um dendrochronologisch datierte Jahresringe von alten Bäumen, sowie um historisch datierte Fundgegenstände. Diesbezügliche Arbeiten wurden publiziert von de Vries (1), Suess (2), Kigoshi (3) u.a. Aus ihnen geht hervor, dass das Verhältnis C-14/C-12 Schwankungen bis zu 7% unterworfen ist. Zwei Perioden mit Schwankungen verschiedenen Charakters sind besonders interessant :

- Ein deutliches Maximum in der Grössenordnung von 2% erscheint um 1700 (de Vries) Fig.1.
- Um 3000 v.Chr. erscheint die C-14/C-12 - Konzentration um 5 - 7% erhöht. Es ist nicht bekannt, ob es sich dabei um ein isoliertes Maximum handelt, oder ob die Konzentration über einen langen Zeitraum so hohe oder sogar noch höhere Werte erreichte, da keine Messungen von älteren Proben zur Verfügung stehen(Fig.2).

Es erscheint angezeigt, die beiden Erscheinungen getrennt zu behandeln. Die auf die Eiszeit folgenden grossen Klimaschwankungen können zu jener Zeit das Gleichgewicht zwischen den einzelnen Reservoirs des C-14 beträchtlich gestört haben was bei den kurzzeitigen und verhältnismässig schwachen Klimaschwankungen unseres Jahrtausends nicht in diesem Masse möglich war.

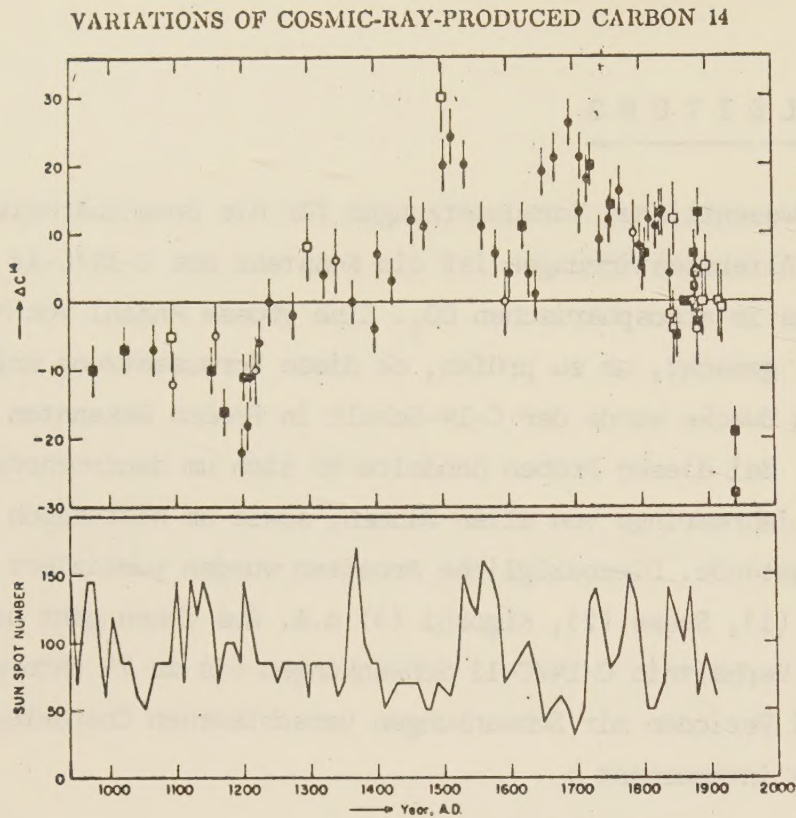


Fig. 1 C-14 - Gehalt in Proben bekannten Alters. Nach Suess (2).

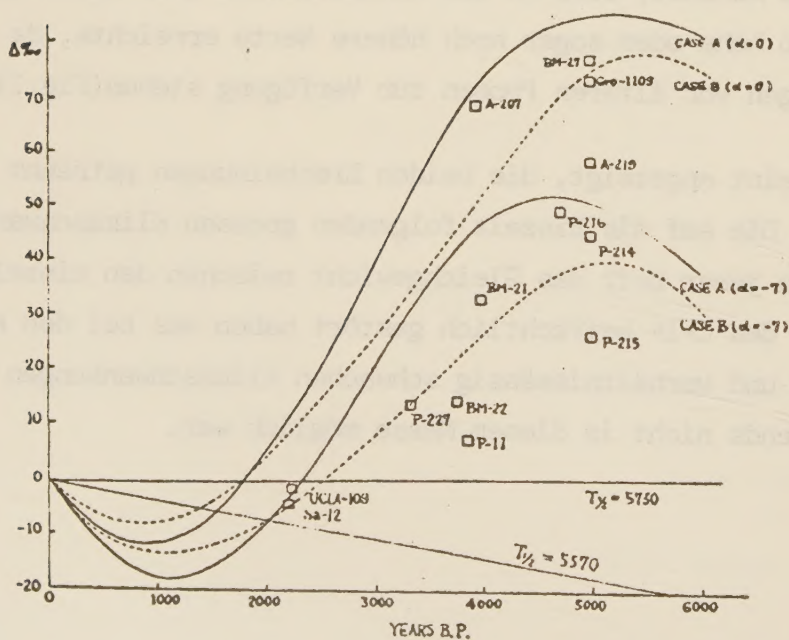


Fig.2 C -14 - Gehalt von Proben bekannten Alters. Nach Kigoshi (3).

Wer mit C-4 - Datierungen beschäftigt ist, kann sich im Prinzip darauf beschränken, diese Schwankungen zu kennen, um sie in seinen Berechnungen in geeigneter Weise berücksichtigen zu können. Die Kenntnis der Ursachen dieser Schwankungen könnte andererseits wertvolle Erkenntnisse allgemeiner Art liefern. Verschiedene Mechanismen wurden vorgeschlagen, um derartige Schwankungen zu erklären.

1.1. Schwankungen in der Produktionsrate

Diese Schwankungen können verschiedene Ursachen haben:

- Schwankungen der Intensität der produzierenden Strahlung, nämlich der galaktischen Komponente der kosmischen Strahlung. Derartige Schwankungen können beim heutigen Stand der Kenntnisse nicht in die Diskussion einbezogen werden.
- Schwankungen der Abschirmeffekte. Abschirmend wirken in erster Linie die von der Sonne ausgeschleuderten Plasmawolken und das Magnetfeld der Erde.

1.1.1. Langfristige Schwankungen in der Intensität der solaren Korpuskularstrahlung

Es ist seit langem bekannt, dass die Produktion von Radionukliden in der Atmosphäre von der Sonne beeinflusst wird. Es konnte gezeigt werden, dass kurzfristige Schwankungen der Sonnenaktivität (11-Jahreszyklus) korrelierbare Schwankungen in der Produktion dieser Nuklide zur Folge haben.

-Antikorrelation entsteht, weil die galaktische Komponente der kosmischen Strahlung durch die von der Sonne ausgeschleuderten Plasmawolken teilweise abgeschirmt wird (Begemann (4), Oeschger, Aegerter et al.(5)).

-Ein positiv korrelierter Beitrag stammt aus der verstärkten Einwirkung der solaren Korpuskularstrahlung auf die obere Atmosphäre (Oeschger, Aegerter et al.(5)).

Falls langfristige Schwankungen der Sonnenfleckentätigkeit vorkommen sollten, was auf Grund der bekannten Sonnenfleckenrelativzahlen nicht ausgeschlossen werden kann (Waldmeier (6)), so wären auch langfristige Schwankungen in der Produktionsrate der kosmogenen Radionuklide zu erwarten. Das C-14 ist nun insofern ein Sonderfall, als solche Schwankungen durch den Austausch mit dem grossen Reservoir in den Ozeanen sehr stark gedämpft werden (s. unten). Um die atmosphärische Konzentration innerhalb eines Jahrhunderts um 2% zu erhöhen, wäre eine um mindestens 20% verstärkte Produktion erforderlich.

1.1.2. Veränderungen des magnetischen Dipolmomentes der Erde

Das Magnetfeld der Erde bewirkt, dass nur Teilchen höherer Energie die Erdatmosphäre erreichen (minimale Rigidity $P_0 = 14,8 \cos^4$ BV). Nun ist das Dipolmoment der Erde nicht konstant, wie aus Untersuchungen an erstarrter Lava hervorging; es scheint vor 5000 Jahren höher gewesen zu sein (Nagata, Arai, Momoses (7), Thellier (8)).

Der Einfluss einer Änderung des Dipolmomentes der Erde auf die Produktion von Radionukliden wurde unabhängig von zwei Autoren untersucht (Aegerter (9), Yamaguchi (10)). Das Resultat aus (9) ist in Fig.3. wiedergegeben. Kigoshi und Hasegawa (3) verglichen die C-14 - Schwankungen der letzten Jahrtausende mit den zur Verfügung stehenden Daten über das Dipolmoment der Erde. Sie kommen zum Schluss, dass eine Korrelation festgestellt werden kann, wenn auch die Übereinstimmung nicht sehr gut ist, da die Magnetfelddaten eine grosse Streuung aufweisen.

1.2. Änderungen im Austausch zwischen den einzelnen Reservoirs

Für das C-14 kommen hauptsächlich die folgenden Speicher in Betracht :

- Atmosphäre	6% *)	1,7% **)
- Mixed layer	2%	2%
- Tiefsee	92%	96,3%

Eine feinere Differenzierung ist für unsere Betrachtungen nicht erforderlich. Das in der Biosphäre enthaltene C-14 fällt mengenmässig nicht ins Gewicht. Eine Unterteilung der Atmosphäre in Stratosphäre und Troposphäre ist nicht notwendig, da der Austausch zwischen den beiden Teilen viel schneller vor sich geht als zwischen den übrigen Reservoirs, nämlich etwa innerhalb eines Jahres.

*) Lal (11)

**) Craig (12)

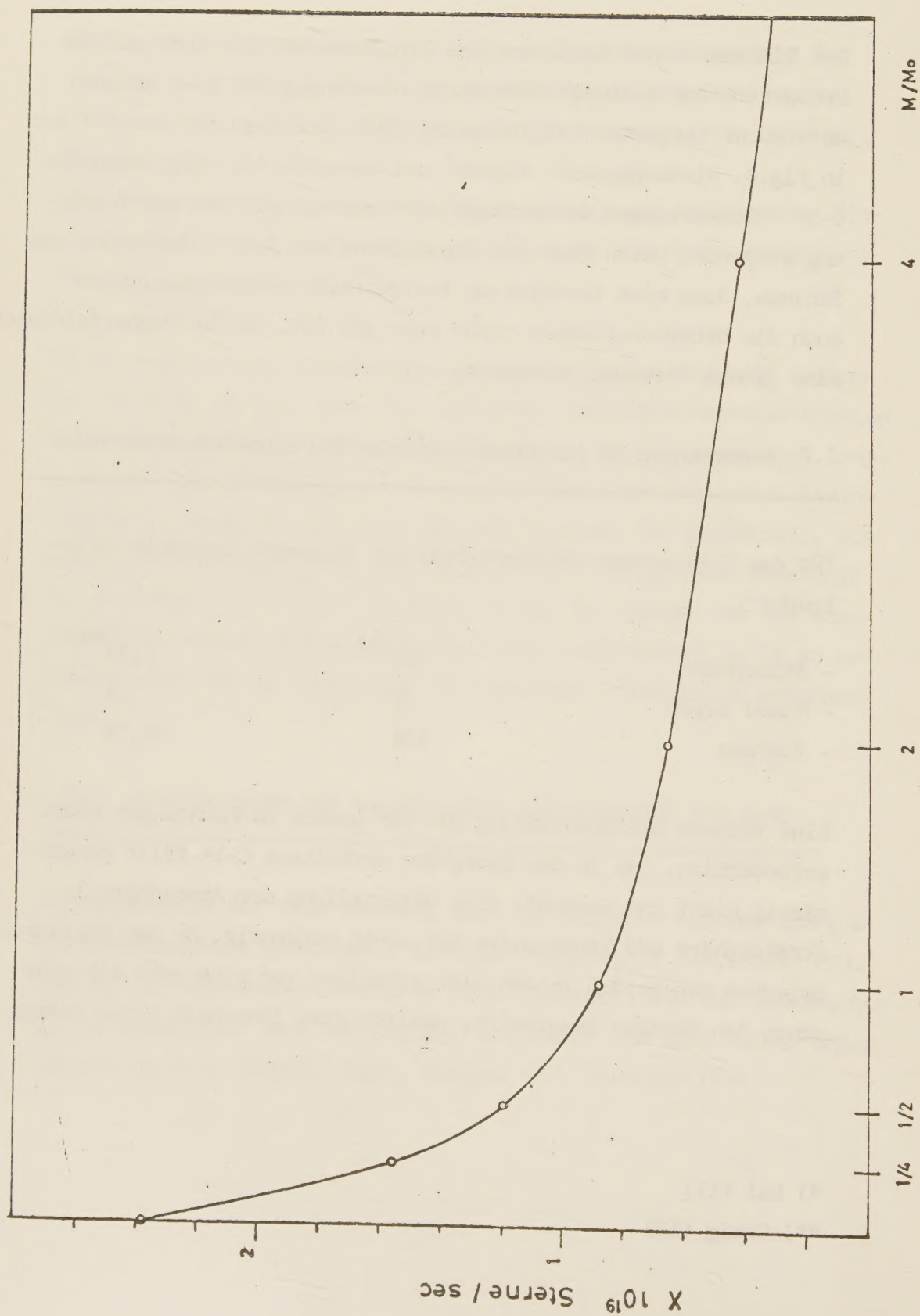


Fig. 3 Produktion von Radionukliden als Funktion des Magnetfeldes der Erde.

Die klimatischen Bedingungen können den Austausch von CO_2 zwischen den verschiedenen Reservoirs beträchtlich beeinflussen. Einige der möglichen Prozesse seien erwähnt, ohne die Grössenordnung der resultierenden Effekte abzuschätzen, was ausserhalb des Rahmens dieser Arbeit gelegen hätte.

- Eine Erwärmung der Atmosphäre und der obersten Schichten der Meere hätte einen schnelleren Austausch zwischen Atmosphäre und Mixed layer zur Folge und dementsprechend eine Abnahme der C-14 - Konzentration in der Atmosphäre. Eine Erwärmung der Meere vergrössert den Mixed layer durch Absenken der Thermokline, was im Anfang die C-14 - Konzentration in der Atmosphäre ebenfalls verkleinert (Fig.4). Eine Veränderung der Löslichkeit von CO_2 im Mixed layer hätte eine Veränderung der relativen Grösse der Speicher Atmosphäre und Mixed layer zur Folge.
- Eine allgemeine Abkühlung hat im Wesentlichen die umgekehrten Effekte zur Folge. Die durch die Verkleinerung des Mixed layer verursachte Vergrösserung der atmosphärischen Konzentration ist aber in diesem Falle vernachlässigbar (Fig.5).
- Eine klimatisch bedingte Veränderung der Vegetationsdichte kann den C-14 - Haushalt der Atmosphäre ebenfalls beeinflussen. Grössenordnungen können aus den lokalen Schwankungen in Wald- und Graslandschaft abgeschätzt werden (de Vries (1)).
- Das Abschmelzen von Eiskappen, wie das während der Postglazialzeit geschehen ist, setzt grössere Mengen altes CO_2 frei.

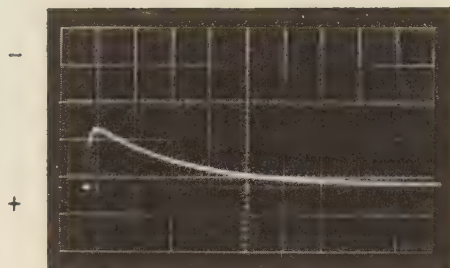


Fig. 4 Änderung der C-14 - Konzentration im atmosphärischen CO_2 bei einer plötzlichen Vergrößerung des Mixed layer um einen Faktor 3 auf Kosten der Tiefsee
Zeitskala: 50 Jahre pro Skalenteil
Maximale Änderung: 6,5%



Fig. 5 Änderung der C-14 - Konzentration im atmosphärischen CO_2 bei einer plötzlichen Verkleinerung des Mixed layer um einen Faktor 3 zugunsten der Tiefsee
Zeitskala: 50 Jahre pro Skalenteil
Maximale Änderung: 0,4%

Da das de Vries-Maximum der C-14 - Konzentration mit der "kleinen" Eiszeit des 17. Jahrhunderts zusammenfällt, scheint sich ein Zusammenhang aufzudrängen. Andererseits ist es nicht ausgeschlossen, dass Klimaschwankungen die C-14 - Konzentration nur unwesentlich beeinflussen, beide Schwankungen jedoch die gleiche Ursache haben, nämlich die unterschiedliche Aktivität der Sonne. Es ist keineswegs klar, durch welche Mechanismen die Sonnenflecken-tätigkeit das Wetter auf der Erde beeinflussen kann, doch gibt es Anhaltspunkte, die auf die Existenz solcher Mechanismen schliessen lassen :

Aus der Analyse der Luftdruckkarten der nördlichen Hemisphäre der Jahre 1949 - 1962 fanden Gnewischew und Sasanow (13), dass extreme Luftdruckschwankungen zur Zeit von Sonnenfleckenmaxima und Minima vermehrt auftreten.

1.3. Elektronische Simulation des Verhaltens des C-14

Bereits de Vries (1) hat vorgeschlagen, den Einfluss einer Produktionsschwankung auf die C-14 - Konzentration der verschiedenen Reservoirs durch einen einfachen Analog-Computer zu simulieren. Ein zyklisches Zwei - Box - Modell kann zwar noch gerechnet werden (Houtermans (14)), doch wird der Aufwand für ein Drei - Box - Modell prohibitiv. Für gewisse Abschätzungen können die rasch austauschenden Reservoirs Atmosphäre und Mixed layer zusammengefasst werden. Sollen aber die Einflüsse einer Änderung dieser beiden Reservoirs betrachtet werden, so ist es unumgänglich, mit drei

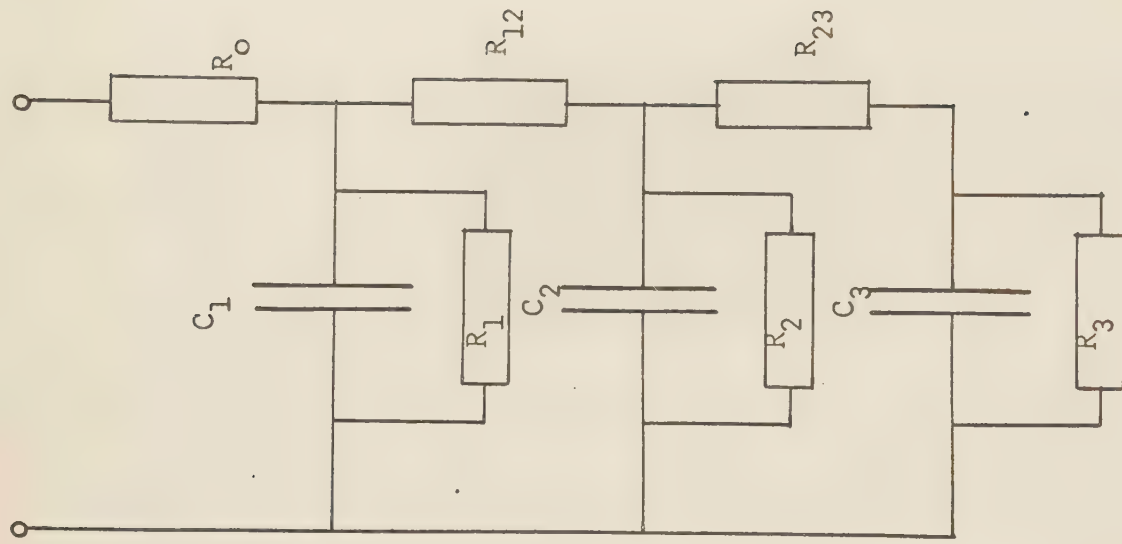
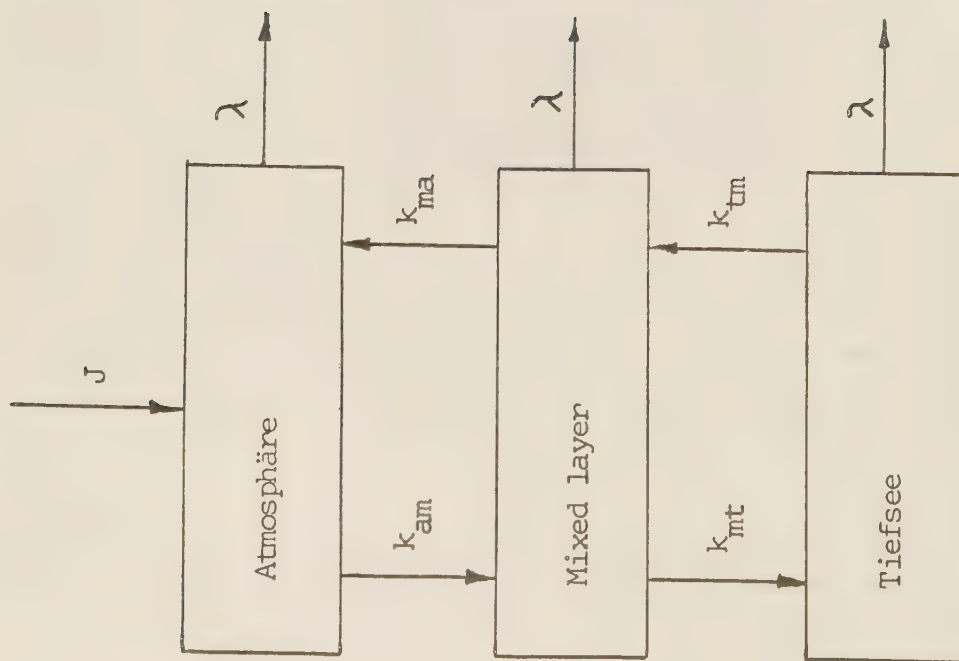


Fig. 5a Zyklisches 3-Box - Modell und dessen Darstellung durch einen Analogcomputer

Boxes zu rechnen. Bei dem zur Verwendung gelangenden Analog-Computer, der im Prinzip ein Tiefpassfilter darstellt, sind die Reservoirs durch passende Kondensatoren, Zerfall und Austausch durch passende Widerstände simuliert. Zum Berechnen der Kapazitäten und Widerstände werden die für einen stationären Zustand der beiden Systeme geltenden Gleichungen einander gegenübergestellt :

Es bedeuten : N_i Grösse des i-ten Reservoirs
 A_i Konzentration im i-ten Reservoir
 k_{ij} Austauschkonstante vom i-ten ins j-te Reservoir
 λ Zerfallskonstante des C-14

Für die einzelnen Reservoirs des zyklischen Modells gelten die Beziehungen:

Atmosphäre: $J + N_m A_m k_{ma} - N_a A_a (k_{am} + \lambda) = 0$
Mixed Layer: $N_a A_a k_{am} - N_m A_m (k_{ma} + k_{mt} + \lambda) + N_t A_t k_{tm} = 0$
Tiefsee : $N_m A_m k_{mt} - N_t A_t (k_{tm} + \lambda) = 0$

Für die einzelnen Kondensatoren des Analogrechners gelten die Gleichungen:

$$C_1 : \quad J - \frac{V_1}{R_1} - \frac{V_1 - V_2}{R_{12}} = 0$$

$$C_2 : \quad \frac{V_1 - V_2}{R_{12}} - \frac{V_2}{R_2} - \frac{V_2 - V_3}{R_{23}} = 0$$

$$C_3 : \quad \frac{V_2 - V_3}{R_{23}} - \frac{V_3}{R_3} = 0$$

Durch Zusammenfassen der Glieder mit der gleichen Spannung als Faktoren und Erweitern mit den entsprechenden Kapazitäten erhalten wir :

$$J + \frac{V_2 C_2}{R_{12} C_2} - V_1 C_1 \left(\frac{1}{R_1 C_1} + \frac{1}{R_{12} C_1} \right) = 0$$

$$\frac{V_1 C_1}{R_{12} C_1} + \frac{V_3 C_3}{R_{23} C_3} - V_2 C_2 \left(\frac{1}{R_{12} C_2} + \frac{1}{R_2 C_2} + \frac{1}{R_{23} C_2} \right) = 0$$

$$\frac{V_2 C_2}{R_{23} C_2} - V_3 C_3 \left(\frac{1}{R_{23} C_3} + \frac{1}{R_3 C_3} \right) = 0$$

Nun findet man durch Identifikation der einzelnen Summanden die Beziehungen :

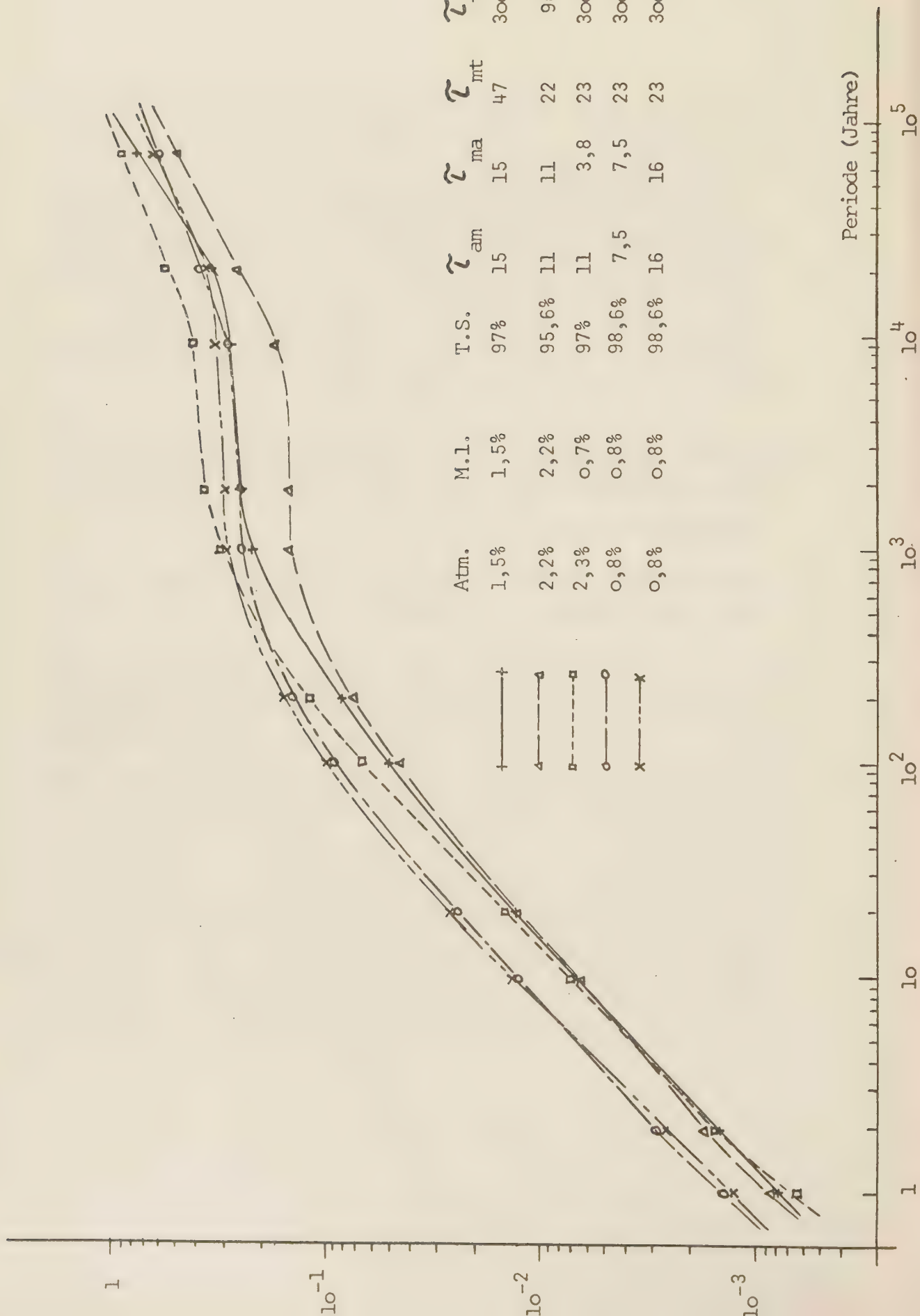
C_i	$\longleftrightarrow$	N_i
V_i	$\longleftrightarrow$	A_i
k_{ij}	$\longleftrightarrow$	$\frac{1}{C_i R_{ij}}$
λ	$\longleftrightarrow$	$\frac{1}{C_i R_i}$

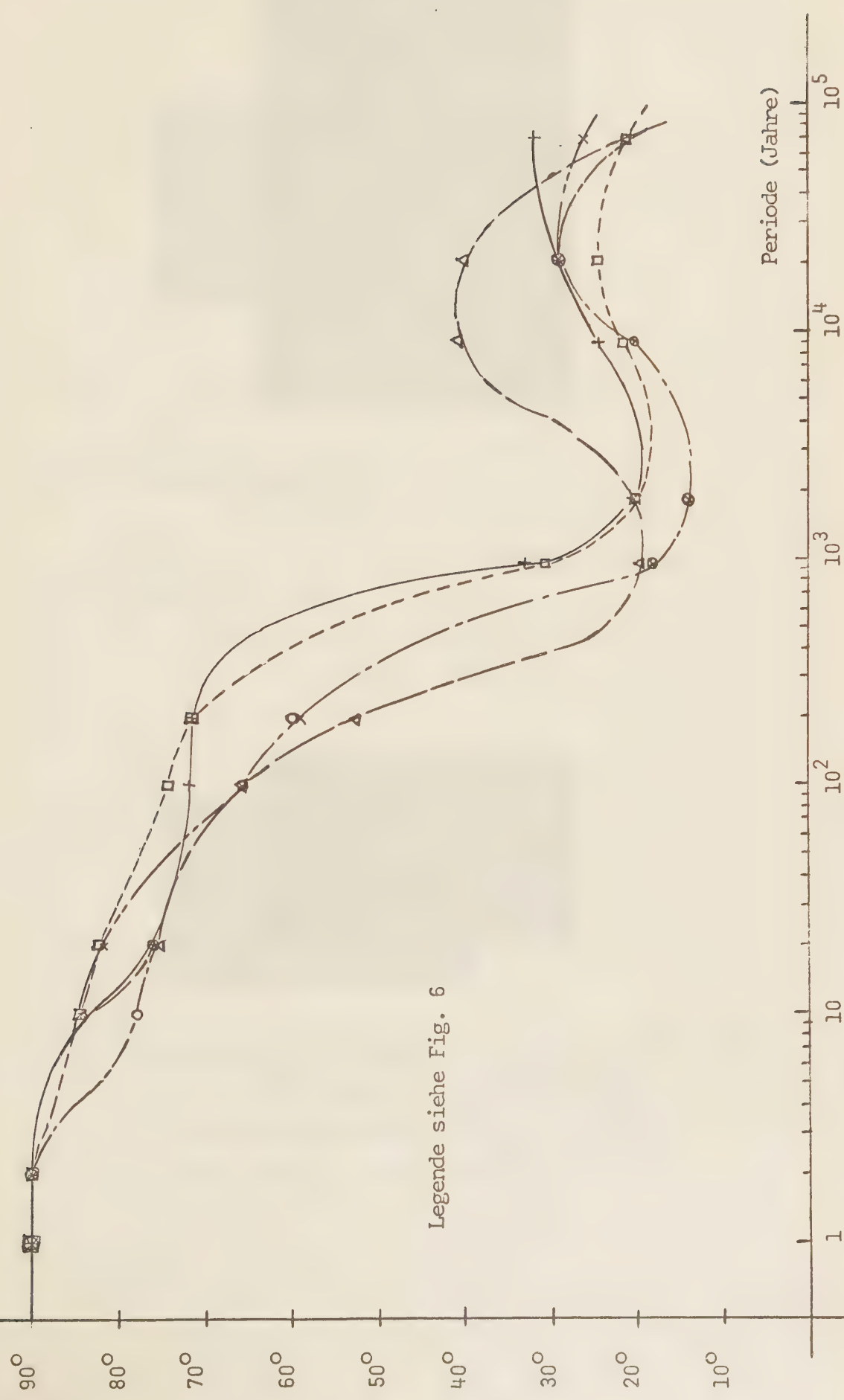
Der Strom J entspricht dabei der Produktion. Der Widerstand R_0 wird vorgeschaltet, um Strom und Stromschwankungen als Spannung und Spannungsschwankungen messen zu können. Er ist gross zu wählen verglichen mit dem totalen Widerstand des übrigen Netzwerkes. Mit Hilfe eines Doppelstrahl-Kathodenstrahloszillographen und eines Sinusgenerators wurden Dämpfung und Phasenverschiebung als Funktion der Frequenz einer harmonischen Schwingung gemessen. Die Ergebnisse für verschiedene Reservoirs und Austauschkonstanten sind in den Figuren 6 und 7 dargestellt.

Für einen speziellen Fall wird in Fig.8 und 9 die Wirkung einer plötzlichen Erhöhung der Produktion auf die C-14 - Konzentration der Atmosphäre gezeigt.

Fig.4 zeigt den Einfluss einer plötzlichen Vergrösserung des Mixed layer auf Kosten der Tiefsee.

Der Entscheid, welcher der Effekte, Aenderung der Produktion oder Aenderung des Austauschverhaltens, letztlich für die Schwankungen des C-14/C-12 - Verhältnisses verantwortlich ist, kann nur gefällt werden, wenn ein Isotop mit völlig anderem geochemischen Verhalten, jedoch ähnlicher Produktion untersucht wird. Auf Grund der Halbwertszeit kommt dafür in erster Linie das Si-32 in Frage. Da der Austausch zwischen den einzelnen Reservoirs nur in einer Richtung vor sich geht (Kettenmodell), treten Produktionsschwankungen, die länger dauern als einige Jahre klar hervor und werden nicht gedämpft, während klimatische Veränderungen keinen wesentlichen Einfluss auf die Deposition haben können. Argon-39 hätte eine brauchbare Halb-





Legende siehe Fig. 6

Figur 7 Phasenverschiebung einer harmonischen Schwankung als Funktion der Frequenz

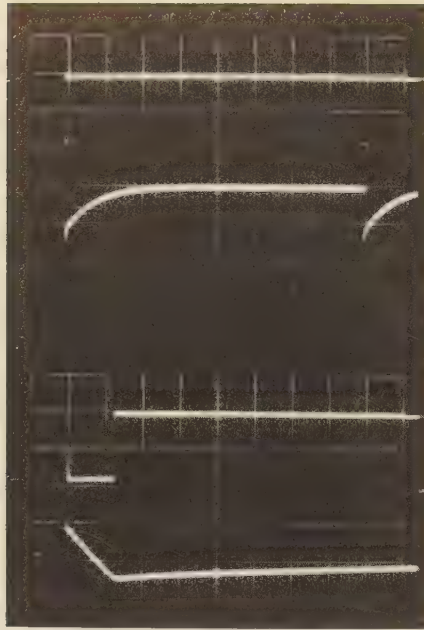


Fig. 8 Einfluss einer kurzzeitigen Produktionsänderung auf die atmosphärische C-14 - Konzentration.

Zeitskala oberes Bild: 100 Jahre pro Skalenteil

unteres Bild: 1 Jahr pro Skalenteil

Masstab oberer Strahl zu unterer Strahl:

in beiden Bildern 128:1

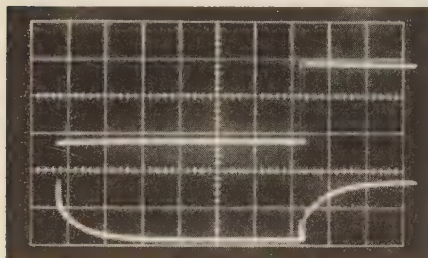


Fig. 9 Einfluss einer langdauernden Produktionsänderung auf die atmosphärische C-14 - Konzentration.

Zeitskala: 10^4 Jahre pro Skalenteil

Masstab: 1,28 : 1

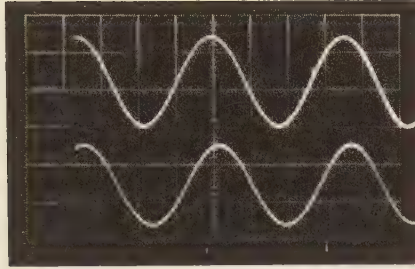


Fig. 10 Einfluss einer harmonischen Produktionsschwankung
auf die C-14 - Konzentration der Atmosphäre.
Zeitskala: 500 Jahre pro Skalenteil.
Masstab oben zu unten: 12,8 : 5

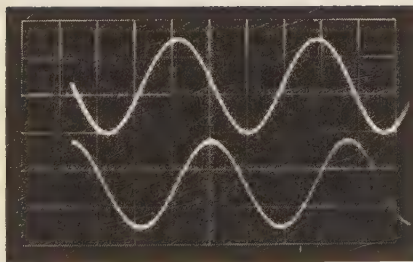


Fig. 11

Einfluss einer harmonischen Produktionsschwankung
auf die C-14 -Konzentration der Atmosphäre.
Zeitskala: 5 Jahre pro Skalenteil
Masstab oben zu unten: 128 : 2

wertszeit von 265 Jahren, zeigt aber ähnliches Verhalten $C^{14}O_2$. Im Gegensatz zu diesem befindet sich jedoch der grösste Teil des Argon-39 in der Atmosphäre, sodass genaue Untersuchungen dieses Isotops ebenfalls einigen Aufschluss geben könnten (Loosli (15)).

2. S I L I Z I U M - 32

Si-32 ist ein Beta-Strahler mit einer nicht genau bekannten Halbwertszeit von ungefähr 500 Jahren (Honda und Lal (16)). Es zerfällt in das betainstabile P-32, das seinerseits mit einer Halbwertszeit von 14,3 Tagen in das stabile S-32 zerfällt.

Die Produktion des Si-32 geschieht durch Spallation des in der Luft enthaltenen Argon, welche durch hochenergetische Protonen und Neutronen der primären und sekundären kosmischen Strahlung induziert wird. Mit Hilfe von verschiedenen Methoden (z.b. Radiosonden und Kernemulsionen etc.) konnte die Anzahl der auftretenden Spallationen als Funktion der Höhe und der geomagnetischen Breite bestimmt werden (siehe z.b. Lal (11)). Daraus und aus den bekannten Spallationsformeln (Rutsdam (17), Oeschger und Schwarz (18)) kann die Produktionsrate abgeschätzt werden. Lal (11) fand ein globales Mittel von $1,6 \cdot 10^{-4}$ Atome / $cm^2 sec.$ Davon wird ca. 70% in der Stratosphäre produziert und gelangt nach einer mittleren Aufenthaltsdauer von ca. 1 Jahr in die Troposphäre (Feely et al.(19)). Dieser Austausch ist sowohl orts- wie zeitabhängig : Er findet in geographischen Breiten über 30° und vorwiegend im Frühling und im Sommer statt. (Nydahl (20), Aegerter, Bhandari et al.(21)).

Die Aerosole, an die sich die radioaktiven Kerne anlagern, werden schliesslich durch Ausregnen und Auswaschen aus der Troposphäre entfernt und liegen sodann zum grössten Teil in gelöster Form in den Gewässern vor. Die Sedimentation in den Ozeanen wird dadurch beschleunigt, dass Si-32 von silikatbildenden Organismen wie Diatomeen und Kiesel Schwämmen, inkorporiert wird. Trotz der zehnmal kleineren Halbwertszeit ist daher ein viermal grösserer Anteil des Si-32 in den Tiefseesedimenten vorhanden als dies beim C-14 der Fall ist (Lal (11)).

Besonders interessant ist der kleine Bruchteil des Si-32, der in den festen Niederschlägen inkorporiert, in den polaren und hochalpinen Eiskappen abgelagert wird. Hier ergibt sich die Möglichkeit, die Si-32 - Konzentration in den Niederschlägen vergangener Zeiten mit guter zeitlicher Auflösung zu verfolgen.

Um die Aussichten für eine erfolgreiche Messung abzuschätzen benötigen wir einen Anhaltspunkt für die zu erwartende Konzentration. Wir benutzen den von Lal (11) angegebenen Wert von $1,6 \cdot 10^{-4}$ Atome/cm²sec. Wenn als mittlerer jährlicher Niederschlag 100 cm Wasseraequivalent angenommen werden, so erhält man

	$5 \cdot 10^3$	Si-32 - Atome/ 100 g Niederschlag
oder	$5 \cdot 10^7$	Si-32 - Atome/ Tonne Niederschlag.

Daraus kann auf Grund der Halbwertszeit von 500 Jahren eine spezifische Aktivität von

0,15 dpm l/ Tonne Niederschlag

errechnet werden.

In mittleren und höheren Breiten kann erwartet werden, dass der wirkliche Wert etwas höher liegt, weil sowohl die Produktion wie die Injektion stratosphärischer Luft hier stärker sind.

Dansgaard (22) führte Si-32 - Bestimmungen an 20t umfassenden Proben von Eisbergen durch und fand Konzentrationen von 0,1 bis 2 dpm/ t, was obige Abschätzungen bestätigt. Da in unserem Institut ein Zähler für feste Beta-Strahler mit einem Nulleffekt von 0,2 cpm zur Verfügung steht (s. unten), entschlossen wir uns vorerst 8 Proben zu je 1 Tonne aufzuarbeiten, was sich jedoch als ungenügend erwies. Eine zweite Serie von 3 Proben zu je 2,5 Tonnen wurde daher gewonnen.

3. EXPERIMENT

Das für unsere Zwecke weitaus am besten geeignete Firnplateau befindet sich auf dem Jungfraujoeh (3457 m ü.M.). Es handelt sich um einen Eisschild, der nach zwei Seiten Gletscher bildet, weshalb in der Gegend der Eisscheide eine ziemlich ungestörte Stratigraphie erwartet werden kann. Glücklicherweise ist die Eisscheide in ihrer ganzen Tiefe relativ leicht zugänglich, da sie von einem Transportstollen der PTT durchzogen ist (Fig.12 und 13).

Sollen Si-32 - Konzentrationen mit C-14 - Konzentrationen in Zusammenhang gebracht werden, muss das Alter der Eisproben einigermaßen bekannt sein. Zwar sind deutliche Schichten zu sehen (Fig.14),

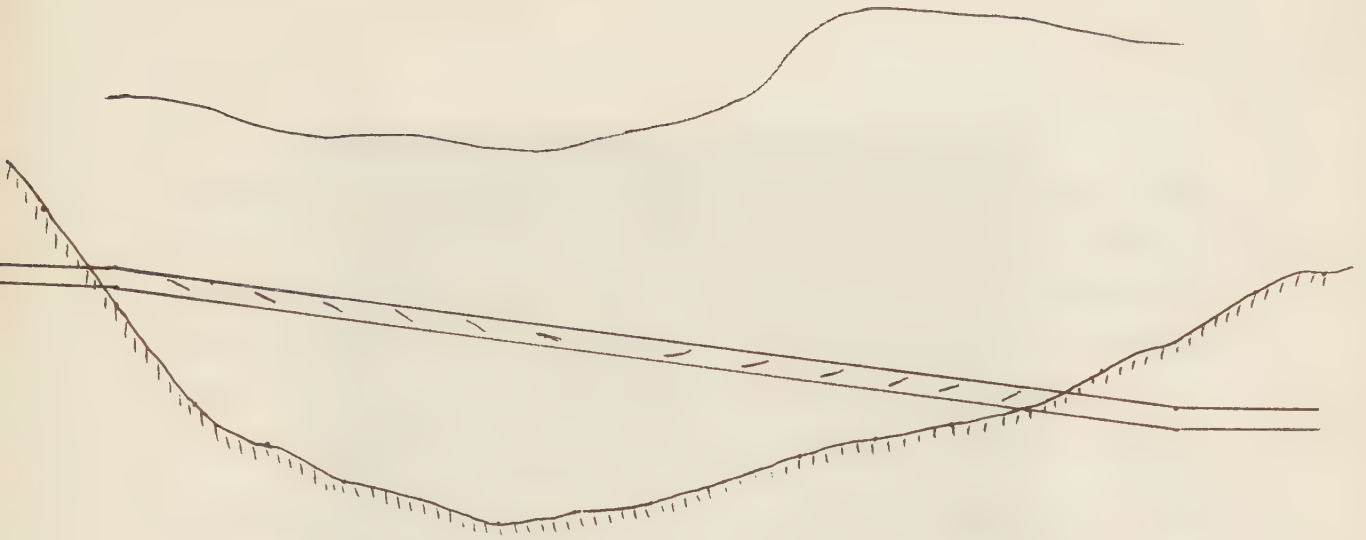


Fig. 12 Situation

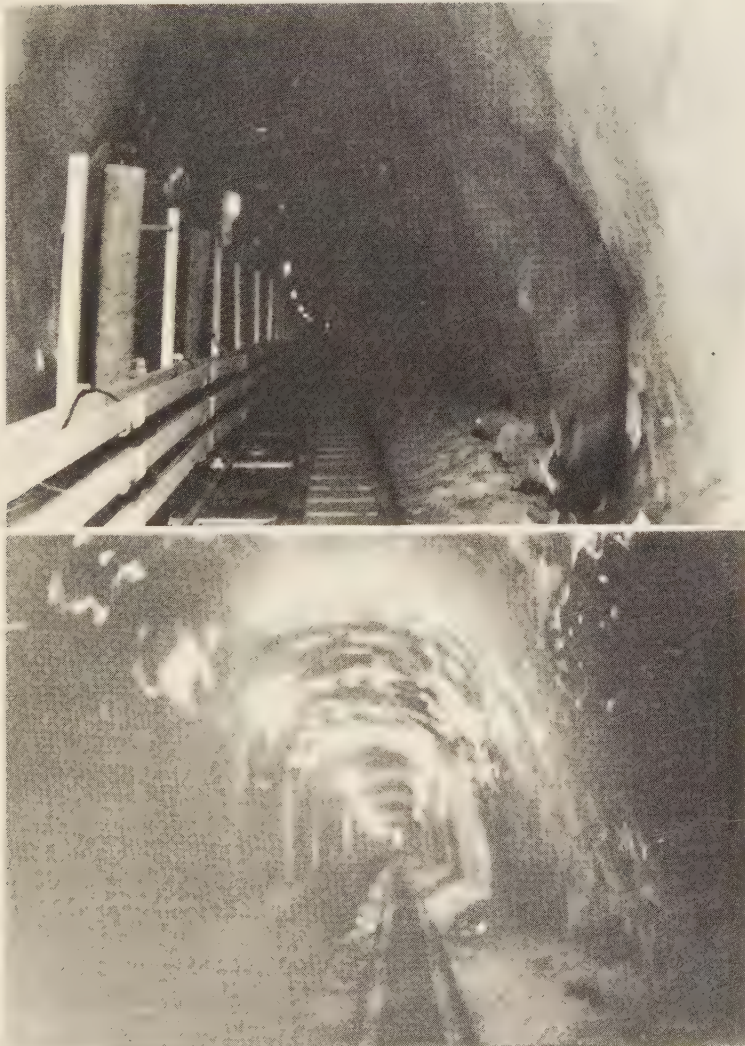


Fig. 13 Eisstollen

aber eine stratigraphische Datierung nach klassischen Methoden scheint wenig aussichtsreich, da die Schichtbildung von klimatischen Verhältnissen beeinflusst wird, die von Jahr zu Jahr verschieden sein können. Für eine Abschätzung des Alters ist man daher fast ausschliesslich auf eismechanische Ueberlegungen angewiesen (Vergleiche auch die Arbeiten von R. Haefeli).

Auf einen Eisblock, der in zwei Richtungen fest abgegrenzt ist, werde in zeitlichen Abständen dt eine Eisschicht der Dicke z_0 gelegt. Auf Grund seines Eigengewichtes verformt sich dieser Block plastisch nach den zwei freien Richtungen. Eine bestimmte Schicht habe nach der Zeit t den Abstand x von der Oberfläche erreicht und sei auf die Dicke z zusammengepresst worden.

Die zeitliche Aenderung der Dicke einer Schicht ist proportional zu dem auf ihr lastenden Druck :

$$\frac{dz}{dt} = K \int_0^x z(x) \rho \, dx$$

mit $\rho = \text{const.}$ und $z_0 = \frac{dx}{dt}$ folgt :

$$\frac{dz}{dt} = K \rho \int_0^t z(t) z_0 \, dt \quad \text{oder}$$

$$\frac{d^2 z}{dt^2} = K z_0 \rho z(t)$$

diese Differentialgleichung wird befriedigt durch den Ansatz :



Fig 14 Schichten im Eis

Die obere Aufnahme wurde an der Entnahmestelle des Deuterium-Profils gemacht.

$$z = z_0 e^{-\alpha t}$$

$$\text{mit } \alpha^2 = K z_0 \rho$$

Ferner gilt :

$$x = \int_0^t z(t) dt = z_0 \int_0^t e^{-\sqrt{K z_0 \rho} t} dt$$

$$x = \frac{z_0}{\sqrt{K z_0 \rho}} (1 - e^{-\sqrt{K z_0 \rho} t})$$

Für das Alter einer Schicht in der Tiefe x erhält man somit :

$$t = - \frac{1}{\sqrt{K z_0 \rho}} \ln \left(1 - \sqrt{\frac{K \rho}{z_0}} \cdot x \right)$$

Die Parameter $z_0 \rho$ (Akkumulation Wasseraequivalent pro Jahr) und K (Fliesskonstante) sind nicht zum Vorneherein bekannt. Eine Bestimmungsgleichung für die beiden Unbekannten kann jedoch aus der totalen Dicke des Eisschildes hergeleitet werden. Diese Dicke beträgt nach R. Haefeli ungefähr 50m . Leider ist die mittlere jährliche Akkumulationsrate nicht bekannt. Die mit Hilfe von Pegeln gemessenen Werte sind sehr unsicher und schwanken zwischen 20 und 80cm . Die Akkumulation muss aber beträchtlich kleiner sein als die jährliche Niederschlagsmenge, da grosse Mengen Schnee vom Winde, dem dieses Plateau besonders stark ausgesetzt ist, verfrachtet werden.

Wir haben uns daher entschlossen, das Problem mit Hilfe der Isotopenstratigraphie anzugehen. Zu diesem Zwecke wurde in einem Ab-

stand von 390cm vom Felsbett ein prismatisches Stück Eis von 41cm Länge herausgeschnitten und in Teile von ca. 1cm zerlegt. Der Deuteriumgehalt dieser Proben wurde in verdankenswerter Weise von Herrn E.Roth vom Centre Nationale des Recherches Nucléaires de Saclay gemessen. Die Resultate dieser Messungen sind in Fig.15 dargestellt.

Die Methode der Isotopenstratigraphie hat sich in den polaren Eiskappen sehr bewährt (Benson (23), Epstein et al.(24)). Unseres Wissens wurde sie aber im Alpenraum noch nie angewendet. Wegen den hier herrschenden relativ hohen Temperaturen ist zu befürchten, dass versickerndes Schmelzwasser die Jahresschichten verwischt. Eine Interpretation der vorliegenden Resultate im Sinne der in Fig.15 eingezeichneten Jahresschichten erscheint aber durchaus gerechtfertigt.

Eine Analyse der von R. Haefeli im unteren Teil des Stollens ausgezählten Schichten zeigt, dass das oben skizzierte Modell der Deformation in der Nähe des Felsbettes nicht mehr stimmt. Die Schichten sind dort dicker als dies zu erwarten wäre. Eine Umrechnung auf die ursprüngliche Dicke der Schichten zeigt aber mit zunehmendem Abstand vom Felsbett eine rasche Annäherung an ca.30cm. Dieser Wert kann als mittlere ursprüngliche Dicke einer sichtbaren Schicht angenommen werden.

An der Entnahmestelle unseres Deuteriumprofils findet Haefeli eine mittlere Schichtdicke von 6,9cm , d.h. dass eine Jahresschicht im Mittel 1,4 sichtbare Schichten enthält, was eine ursprüngliche

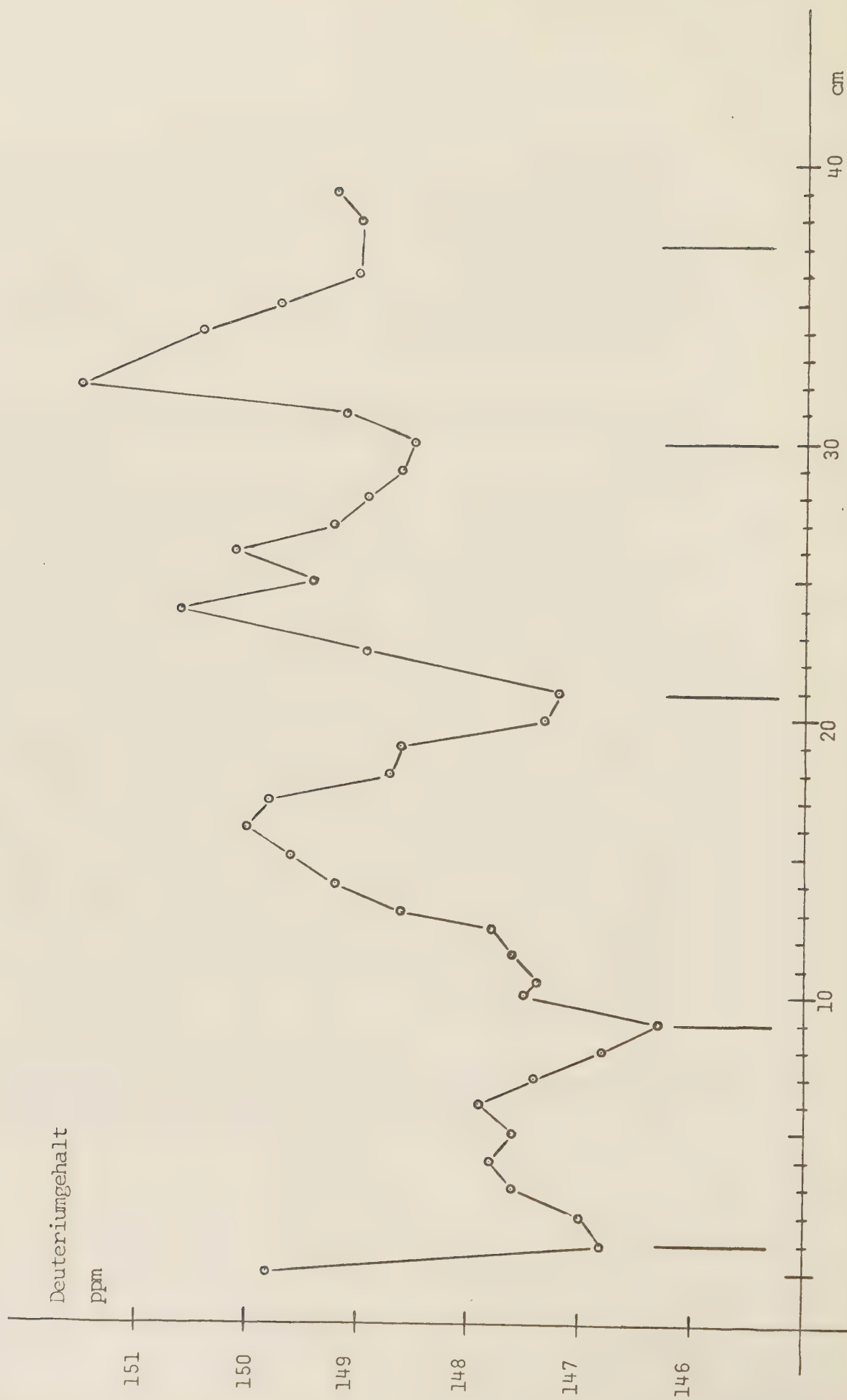


fig. 15 Deuteriumprofil

Dicke einer Jahresschicht von 40cm ergibt.

3.1. Arbeiten im Eisstollen

Die Extraktion des Si-32 aus dem geschmolzenen Eis erfolgte mittels Silikatträger unter Koprecipitation von FeOH.

Das Eis wurde an der vorausbestimmten Stelle herausgehackt (Fig.16) und in einen Behälter mit $1,8 \text{ m}^3$ Inhalt gefüllt. Zum Schmelzen dienten zehn Tauchsieder zu 1 kW. Dem Wasser wurden 50g gelöstes Natriumsilikat beigegeben und gut umgerührt. Hierauf wurde der pH-Wert mit Ammoniak stufenweise unter wiederholtem Umrühren auf ca. 13 gebracht, wobei FeOH ausfällt. Dieser Niederschlag wurde abgesetzt und das klare Wasser dekantiert. Zum Schluss wurde der abgesetzte Schlamm in einem grossen Filzfilter filtriert und der Filterrückstand in Polyäthylensäcke verpackt. Die in einem Arbeitsgang behandelte Menge Eis betrug ca. 1,2 Tonnen. Für die Proben der zweiten Serie wurden zwei Arbeitsgänge pro Probe benötigt. Die Ausbeute in der Gewinnung der Silikate, sowie die Menge der bereits im Eis vorhandenen Silikate wurde spektrometrisch bestimmt. Diese Messungen wurden in verdankenswerter Weise von Herrn Dr.D.P. Kharkar vom Tata Institute of Fundamental Research in Bombay durchgeführt.

Aufnahme vom 11. März 1964. mit Theo Metzger
Zählung und Vermessung der Jahresschichten.

Legende : (100) Anzahl Schichten

149 Höhe über 0-Punkt

Strecke		$\text{tg} \alpha$
1 - 2	$108 : 3,11 = 0.346$	
2 - 3	$80 : 3,44 = 0.235$	
3 - 4	$106 : 4,50 = 0.235$	
4 - 5	$112 : 4,41 = 0.253$	
5 - 6	$120 : 5,71 = 0.210$	
6 - 7	$130 : 6,62 = 0.197$	
7 - 8	$150 : 7,08 = 0.212$	

Schmutzschicht.

Schmutzschicht.

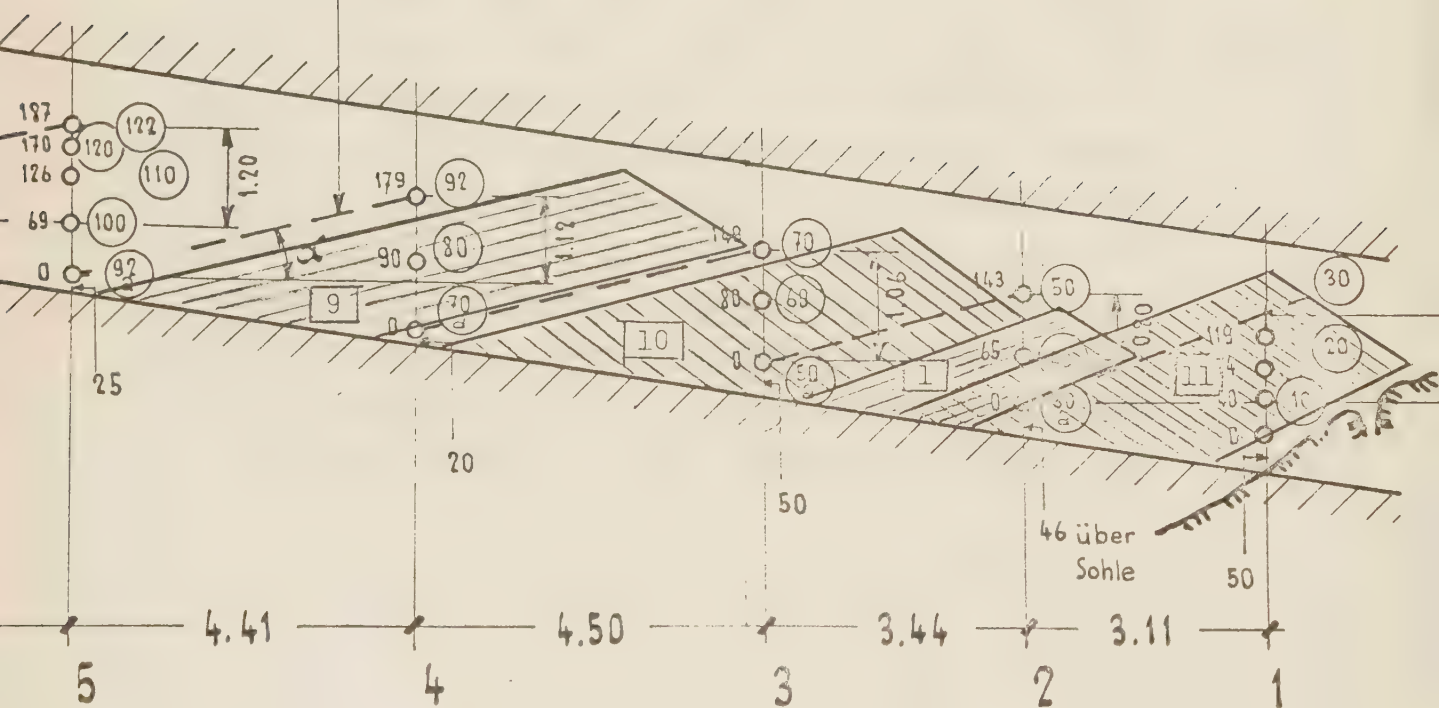


Fig. 16

Lage der Proben 1, 9, 10 und 11

3.2. Arbeiten im Labor

In einem weiteren Schritt mussten die Silikate vom FeOH und von Verunreinigungen abgetrennt werden. Dazu wurde das Gemisch zweimal eingedampft und mit HCl aufgenommen, um alle Silikate unlöslich zu machen, und anschliessend auf der Nutsche filtriert. Der Rückstand wurde mit viel HCl gewaschen, um alles Eisen zu entfernen. Das so gewonnene rohe Silikat wurde in 30%iger NaOH (reinst)-Lösung aufgelöst und wieder filtriert, wodurch die aus dem Eis stammenden Verunreinigungen (Sand, kleine Steine etc.) entfernt wurden. Das Filtrat wurde mit HCl konz. versetzt und dadurch die gelösten Silikate ausgefällt. Die dabei entstehenden grossen Mengen NaCl wurden durch Spülen mit viel heissem Wasser auf der Nutsche entfernt. Die Chloridfreiheit des Filtrats wurde mit Silbernitratstest festgestellt. Das so gereinigte Silikat wurde getrocknet, gegläht, gewogen und zum "Melken" aufbewahrt.

Nach zirka vier Wochen (zwei Halbwertszeiten des P-32) hat die P-32 - Konzentration 75% ihres Sättigungswertes erreicht. Das P-32 kann nun vom SiO_2 abgetrennt werden. Zu diesem Zwecke wird das SiO_2 in NaOH aufgelöst und der Lösung Phosphorträger beigegeben. Nach Fällern des Silikats mit HCl und anschliessendem Filtrieren liegt eine Phosphatlösung vor. Diese wird eingedampft und salzsauer aufgenommen, um eventuell in Lösung verbliebene Silikate auszufällen, und wieder filtriert. Nach Zugabe von Magnesiumnitrat und Ammoniumnitrat wird mit Ammoniak

$\text{MgNH}_4\text{PO}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$ ausgefällt, filtriert, bei 150°C getrocknet, gewogen und zum Messen der Aktivität vorbereitet.

Die Messung der Aktivität des Tochterproduktes des Si-32, des P-32 (Halbwertszeit 14,3 Tage, Maximalenergie der Betastrahlung 1,7 MeV) erfolgte in einem speziell dafür konstruierten Zähler. Es handelt sich um einen flachen Fensterzähler mit einem Fenster von $3,4 \text{ cm}^2$ Fläche. Das Fenster besteht aus einer goldbedampften Mylarfolie und ist 1 mg/cm^2 dick. Der Zähler wird mit "Q-Gas" der Firma Tracerlab im Durchfluss betrieben. Die Abschirmung besteht aus einer 10cm dicken Blei-Hülle. Zur Elimination der u - Mesonenkomponente des Nulleffekts wird der Zähler in Antikoinzidenz mit einem flachen Vieldrahtzähler betrieben. Der dadurch erreichte Nulleffekt beträgt $0,212 \pm 0,008 \text{ cpm}$, verglichen mit $2,65 \text{ cpm}$ ohne Antikoinzidenz. Die Zählrate als Funktion der angelegten Spannung (Plateau) ist in Fig. 17 dargestellt.

Die Ausbeute wurde mit Hilfe einer KCl - Quelle bestimmt. Sie beträgt, mit Berücksichtigung einer kleinen Korrektur wegen der unterschiedlichen Energien, $0,40 \pm 0,01$.

Die Proben wurden in ein Plexiglasschälchen eingewogen und zu einer beta-dünnen Schicht verteilt. Zum Schutz vor Staub wurden sie hierauf mit einer 1 mg/cm^2 dicken Mylarfolie bedeckt. Die Proben wurden während längerer Zeit mehrmals gemessen, um eine eventuelle Kontamination mit Fremdaktivität festzustellen, indem die Abnahme der Aktivität mit der Halbwertszeit von 14,3 Tagen

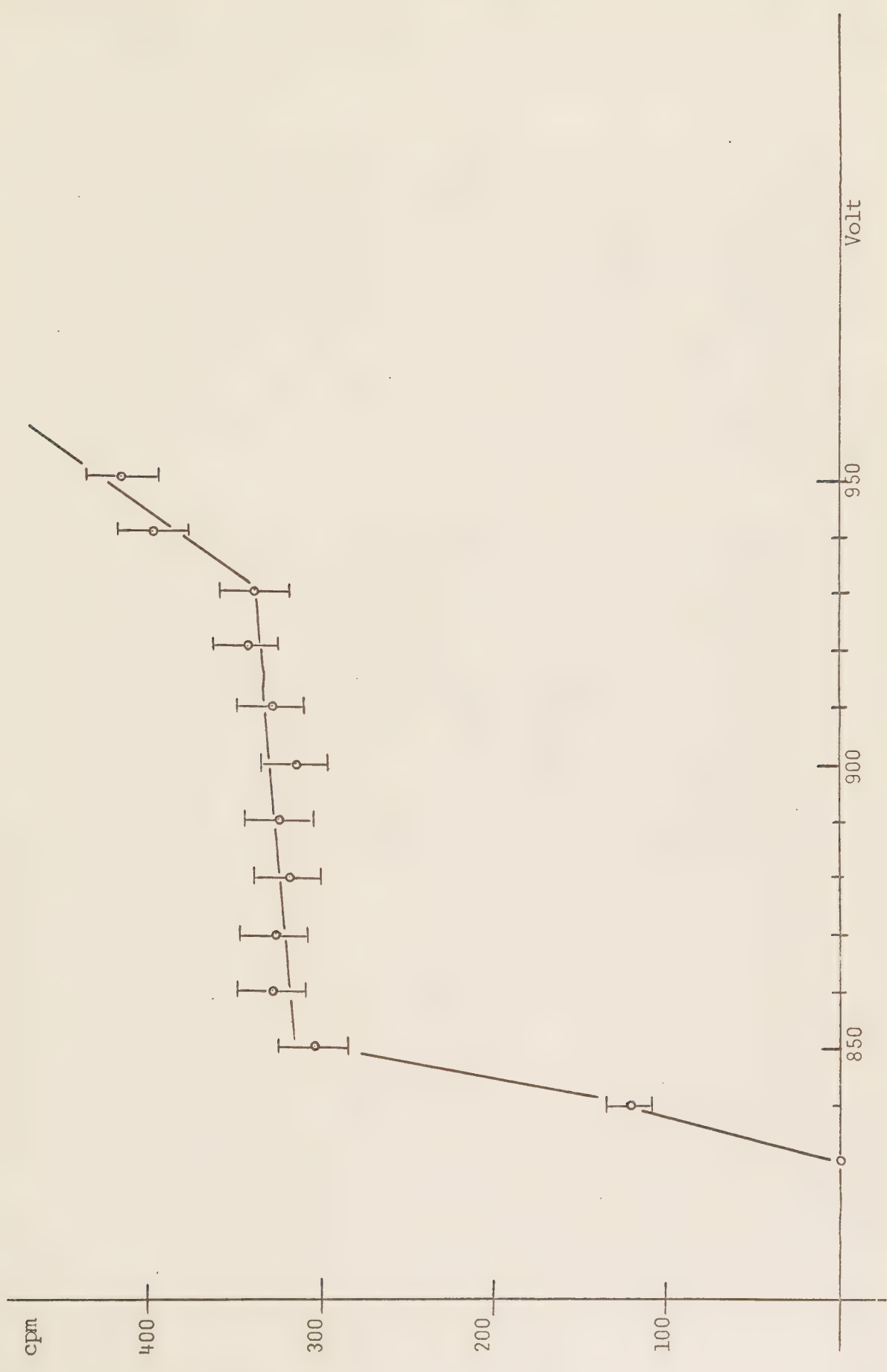


Fig. 17 Plateau des Zählens

verfolgt wurde. Eine Kontamination mit P-32 ist auf diese Weise selbstverständlich nicht nachzuweisen. Die Gefahr einer solchen Kontamination ist aber sehr klein. Die einzig denkbare Möglichkeit besteht beim Melken des P-32 : wenn beim Filtrieren des gefällten SiO_2 auf der Nutsche die Wasserstrahlpumpe längere Zeit in Betrieb gelassen wird, nachdem alle Flüssigkeit abgesaugt worden ist, filtrierte der sehr feinporige Silikatkuchen die P-32 - haltigen Aerosole der durchströmenden Luft ab. Ein Nachspülen mit HCl befördert dieses Aerosole ins Filtrat.

Die Resultate sind in Fig.18 zusammengefasst. Die Proben Nr.1 bis 8 wurden im Frühling 1965 als erste Serie gewonnen. Ihre Messung ergab jedoch mit Ausnahme von Nr.1 nur obere Grenzen in der Grösse von 0,7 dpm/Tonne. Daher wurden die Proben Nr.2 bis 5 und 6 bis 8 zusammengefasst und in dieser Form neu gemessen. Die im Herbst 1965 gewonnene zweite Serie besteht aus den Proben 9, 10 und 11. Die Proben 1, (2 - 5) und (6 - 8) wurden in guter Uebereinstimmung auch von Herrn Dr. Kharkar vom Tata Institute of Fundamental Research in Bombay gemessen.

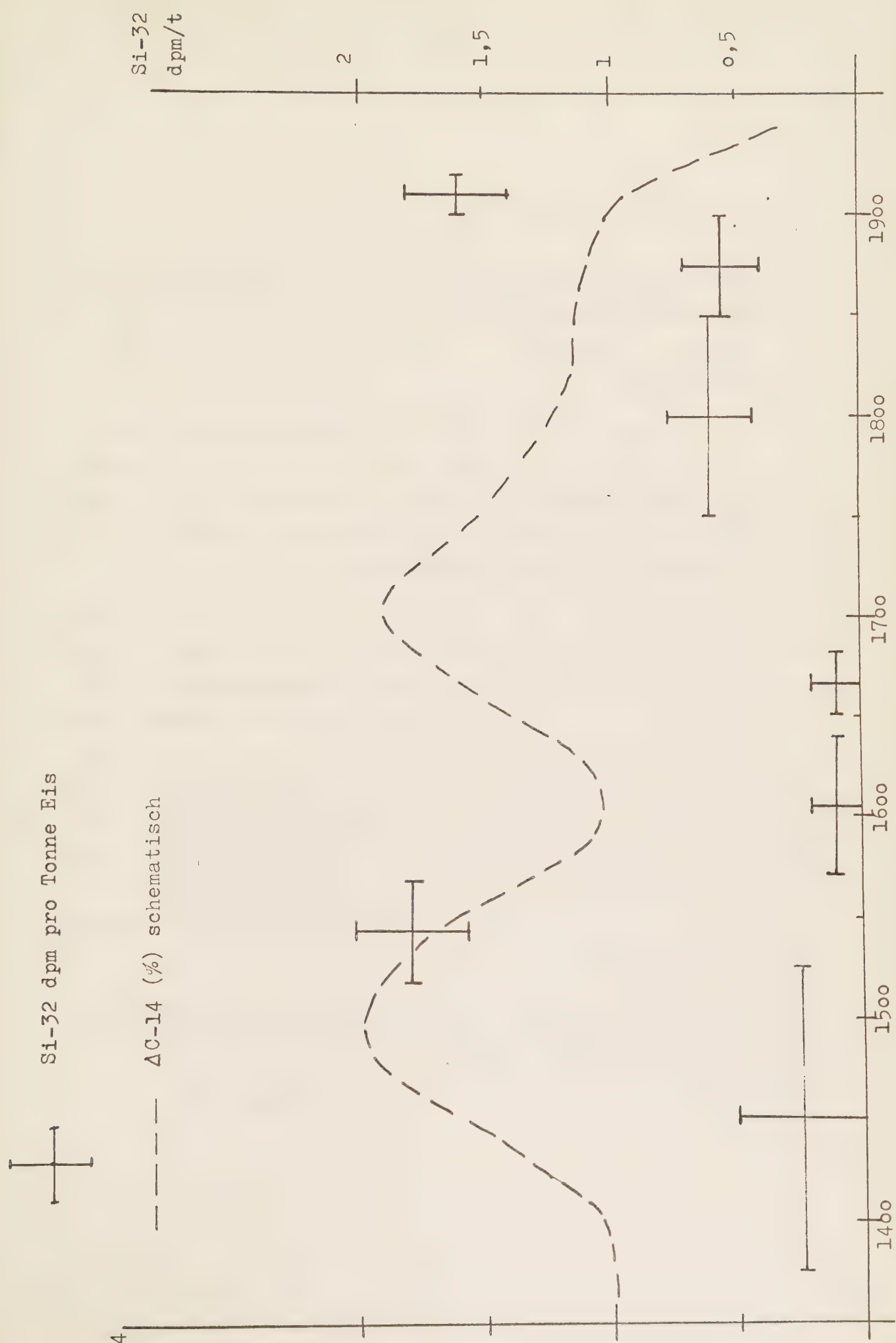


Fig. 18

4. S C H L U S S F O L G E R U N G E N

Die in Fig.18 dargestellten Si-32 - Konzentrationen sind heutige Werte ohne Zerfallskorrektur. Eine solche Korrektur erscheint unnötig, da sie ohnehin nur in der Grössenordnung der Messfehler liegen würde.

Es ist augenfällig, dass die Si-32 - Konzentration deutlichen und signifikanten Schwankungen unterworfen ist. Da diese Schwankungen sehr ausgeprägt sind, ist Si-32 zum Datieren von Eis ungeeignet, wenn nicht Fehler in der Grössenordnung von zwei Si-32 - Halbwertszeiten in Kauf genommen werden.

Im Rahmen dieser Arbeit interessiert in erster Linie die zeitliche Lage der beiden Konzentrationserhöhungen. Die in Kapitel 3. abgeschätzte Zeitskala kann wohl nicht als endgültig betrachtet werden. Es ist aber wohl das Beste, was aus den zur Verfügung stehenden Daten objektiv geschlossen werden kann. Eine Erweiterung der isotopenstratigraphischen Untersuchungen drängt sich auf, besonders im Hinblick auf die ermutigenden Ergebnisse unseres ersten Versuches. Es war seit langem der Wunsch vieler Glaziologen, in diesem Stollen eine Zeitskala zu kennen. Das vorliegende Resultat kann als erster Schritt zur Erfüllung dieses Anliegens mit Hilfe moderner Methoden betrachtet werden.

Schwankungen der Si-32 - Konzentration können durch verschiedene Prozesse verursacht werden :

- Schwankungen der Produktion
- Aenderungen im Austauschverhalten zwischen Stratosphäre und Troposphäre, sowie Aenderung der mittleren Niederschlagsmenge in unseren Breiten
- Anreicherungseffekte wie Verdunsten von Schmelzwasser oder Filterwirkung bei Versickern von Schmelzwasser
- Kontamination

Die letzten beiden Möglichkeiten können für Schwankungen dieser Grössenordnung nicht verantwortlich gemacht werden. Schwankungen der mittleren Niederschlagsrate mit der erforderlichen Amplitude sind aus den letzten 500 Jahren nicht bekannt.

Ein teilweise verdunsteter Schmelzwassersee würde sich als wesentliche Störung in der Stratigraphie äussern. Solche Störungen sind jedoch nicht sichtbar.

Obwohl es sich bei der untersuchten Eiskalotte um einen relativ warmen Gletscher handelt, kann man sich kaum vorstellen, dass einzelne Schichten von so grossen Mengen Schmelzwasser durchflossen worden sind, wie sie zur Erreichung so grosser Anreicherungsfaktoren erforderlich gewesen wären.

Eine Kontamination mit probenfremdem Si-32 ist ausgeschlossen, da Si-32, wenn überhaupt, nur in sehr geringen Mengen in thermodynamischen Prozessen produziert wird. Dansgaard et al. (25) fand in den Jahren 1963/64 in Luft und Niederschlägen eine um das vierfache erhöhte Si-32 - Konzentration verglichen mit den Jahren

1960/61 ; das heisst, dass eine Kontamination unserer Proben nur mit Si-32 aus mehreren hundert Litern Niederschlag möglich gewesen wäre, was mit Sicherheit ausgeschlossen werden kann.

Hingegen kann nicht mit Sicherheit ausgeschlossen werden, dass Aenderungen im Austauschverhalten zwischen Stratosphäre und Troposphäre für derartige Schwankungen verantwortlich sind. Immerhin müsste die Intensität des Austausches zwischen polaren und aequatorialen Werten schwanken.

Falls die Schwankungen in der Deposition von Si-32 reell sind, müssten sie sich weltweit nachweisen lassen, z.B. in den polaren Eisschilden von Grönland und Antarktika.

Ueber den Zusammenhang zwischen den Schwankungen der C-14 - und der Si-32 - Konzentration lassen sich die folgenden Ueberlegungen anstellen:

- Das Si-32 - Maximum um 1550 fällt recht gut mit einem entsprechenden C-14 - Maximum zusammen. Ein Zusammenhang in dem Sinne, dass beide Schwankungen die gleiche Ursache haben, drängt sich auf.
- Für das C-14 - Maximum um 1700 wurde kein entsprechendes Si-32 - Maximum gefunden. Leider ist das Probenprofil nicht kontinuierlich und zeigt gerade an dieser Stelle eine Lücke, so dass aus diesem negativen Ergebnis keine Schlüsse gezogen werden können.

- Auf den ersten Blick überraschend ist das Si-32 - Maximum am Anfang unseres Jahrhunderts. Es muss aber darauf hingewiesen werden, dass zu dieser Zeit bereits der sogenannte "Suess-Effekt" (Suess (26)) - die Verdünnung des atmosphärischen CO_2 mit fossilem CO_2 aus der Verbrennung von Kohle und Oel - zu wirken beginnt. Eine eventuelle Produktionserhöhung würde dadurch überkompensiert.

Die C-14 - Maxima um 1500 und um 1700 fallen zusammen mit niedrigen Sonnenfleckenrelativzahlen. Da die Sonnenflecken-tätigkeit um 1900 ebenfalls niedrig war, scheint die Annahme eines durch den Suess-Effekt verdeckten C-14 - Maximums vernünftig zu sein. Eine Korrelation der Konzentrationsschwankungen der beiden Isotope scheint sich also auch hier zu bestätigen.

Zusammenfassend kann gesagt werden:

Schwankungen in der Produktion von Radionukliden durch die kosmische Strahlung kommen vor und äussern sich in Schwankungen der Konzentration oder der Deposition dieser Nuklide. Aus dem Vergleich der Schwankungen des C-14 und des Si-32 kann geschlossen werden, dass kurze und starke Produktionserhöhungen wahrscheinlicher sind, als ein sinusoidaler Verlauf der Produktion im Laufe der Zeit.

Eine Wiederholung des Experimentes mit einem kontinuierlichen Profil von Proben, die höchstens 25 Jahre umfassen, sowie die Suche nach den hier erwähnten Konzentrationsspitzen an andern Stellen der Erde erscheint angezeigt und könnte weitere Aufschlüsse geben.

Literaturverzeichnis

- (1) de Vries, H.: "Variation in Concentration of Radiocarbon with Time and Location on Earth", Koninkl. Nederl. Akad. Wetenschap Proc., B, 61, p. 94-102, 1958.
- (2) Suess, H. E.: "Secular Variations of the Cosmic-Ray-Produced C-14 in the Atmosphere and their Interpretations", Journal of Geophys. Res. 70, 23, p. 5937-5952, 1965
- (3) Kigoshi, K., H. Hasegawa: "Secular Variations of the Cosmic-Ray-Produced Carbon-14 in the Atmosphere and their Interpretations", Journal of Geophys. Res. 70, 23, p. 5937-5952, 1965
- (4) Begemann F.: "Neubestimmung der natürlichen irdischen Tritiumzerfallsrate und die Frage der Herkunft des "natürlichen" Tritiums", Zeitschrift f. Nat.Forschung 14a, 334, 1959
- (5) Oeschger H., S. Aegerter, A. Renaud, E. Schuhmacher : "Studies based on the Tritium Content of the Ice Samples", EGIG 1957 - 1960, Report 5, 4. Erscheint in "Meddelelser om Grønland" 1967
- (6) Waldmeier M.: "The Sunspot-Activity in the Years 1610 - 1960", Verlag Schulthess & CO AG, Zürich, 1961
- (7) Nagata T., Y. Arai, K. Nomoses : "Secular Variations of the Geomagnetic total Force during the last 5000 years", Journal of Geophys. Res. 68, p. 5277-5281, 1963

- (8) Thellier E., O. Thellier : "Sur l'intensité di champ magnétique terrestre dans le passé historique et géologique", Ann. Géophys. 15, 288, 1959
- (9) Aegerter S.: "Untersuchungen an kosmogenen Radioisotopen", Lizentiatsarbeit der Universität Bern, 1964
- (10) Wada M., A. Yamaguchi : "Relation between C-14-Production Rate and Geomagnetism", Uchusen-kenkyu 8, 1962
- (11) Lal D. : "On the Investigations of Geophysical Processes using Cosmic Ray Produced Radioactivity", Earth Science and Meteoritics, North Holland Publ.Co., 1963
- (12) Craig H. : "The natural Distribution of Radiocarbon", Earth Science and Meteoritics, North Holland Publ.Co., 1963
- (13) Gnewischew M.N., B.I. Sasonow : "Influence of Solar Activity on Processes in the Earth's lower Atmosphere", Soviet Astron. A.J. (Engl. transl.) 8, p.750-753, 1965
- (14) Houtermans J.C.H.: "The Effects of Geophysical Perturbations on the Terrestrial Radiocarbon Inventory", Z.f. Physik, im Druck (1966)
- (15) Loosli H.H.: "Argon-39 in atmosphärischem Argon", Dissertation der Universität Bern, in Vorbereitung
- (16) Honda M., D. Lal : "Spallation Cross-Sections for long lived Isotopes at intermediate Energies in Iron and light Nuclei", Phys. Rev. 118, 6, 1960
- (17) Rudstam G.: Dissertation Universität Uppsala, 1956

- (18) Oeschger H., U. Schwarz : "Spallation Formula deduced from cascade and evaporation theories and compared with Experiments", Paper presented at the Conference on Fission and Spallation, Geneva, Sept. 1961

- (19) Feely H.W., P.E. Biscaye, R.J. Lagomarsino, H. Seitz : "Atmospheric Circulation Rates from Measurements of Nuclear Debris", Tellus 18, 2, 1966

- (20) Nydal R. : "Variation of C-14 Concentration in Atmospheric CO₂ during the last several years", Tellus 18, 2, 1966

- (21) Aegerter S., N. Bhandari, Rama, A.S. Tamhane : "Be-7 and P-32 in surface Air at middle Latitudes", Tellus 18, 2, 1966

- (22) Dansgaard W., H.B. Clausen, A. Aarkog : "The specific Si-32-Activity in Scandinavian and Greenland Precipitation", Tellus 18, 2, 1966

- (23) Benson L.S. : "Stratigraphic Studies in the Snow and Firm of the Greenland Ice Sheet", Ph.D. Thesis, California Inst. of Techn., Pasadena, 1960

- (24) Epstein S., R.P. Sharp, I. Goddard : "Oxygen-Isotope Ratios in Antarctic Snow, Firm and Ice", Journal Geol. 71, 1963

- (25) Dansgaard W., H.B. Clausen, A. Aarkrog : "Evidence for Bomb Produced Si-32, (Preprint 1966)

- (26) Suess H.E. : "Radiocarbon Concentration in Modern Wood", Science 122, 1955

Verdankungen

Meinem verehrten Lehrer, Herrn Prof. Dr. H. Oeschger, der mir die Durchführung dieser Arbeit ermöglicht hat und mir stets mit Rat und Tat zur Seite stand, bin ich sehr zu Dank verpflichtet.

Den Herren Professoren Dr.J.Geiss, Dr.R.Haefeli, Dr.D.Lal und Dr.H.Oeschger bin ich für zahlreiche Anregungen und Ratschläge dankbar.

Herrn Dr.E. Roth vom Centre Nationale des Recherches Nucléaires in Saclay danke ich für die Messung der Deuteriumproben.

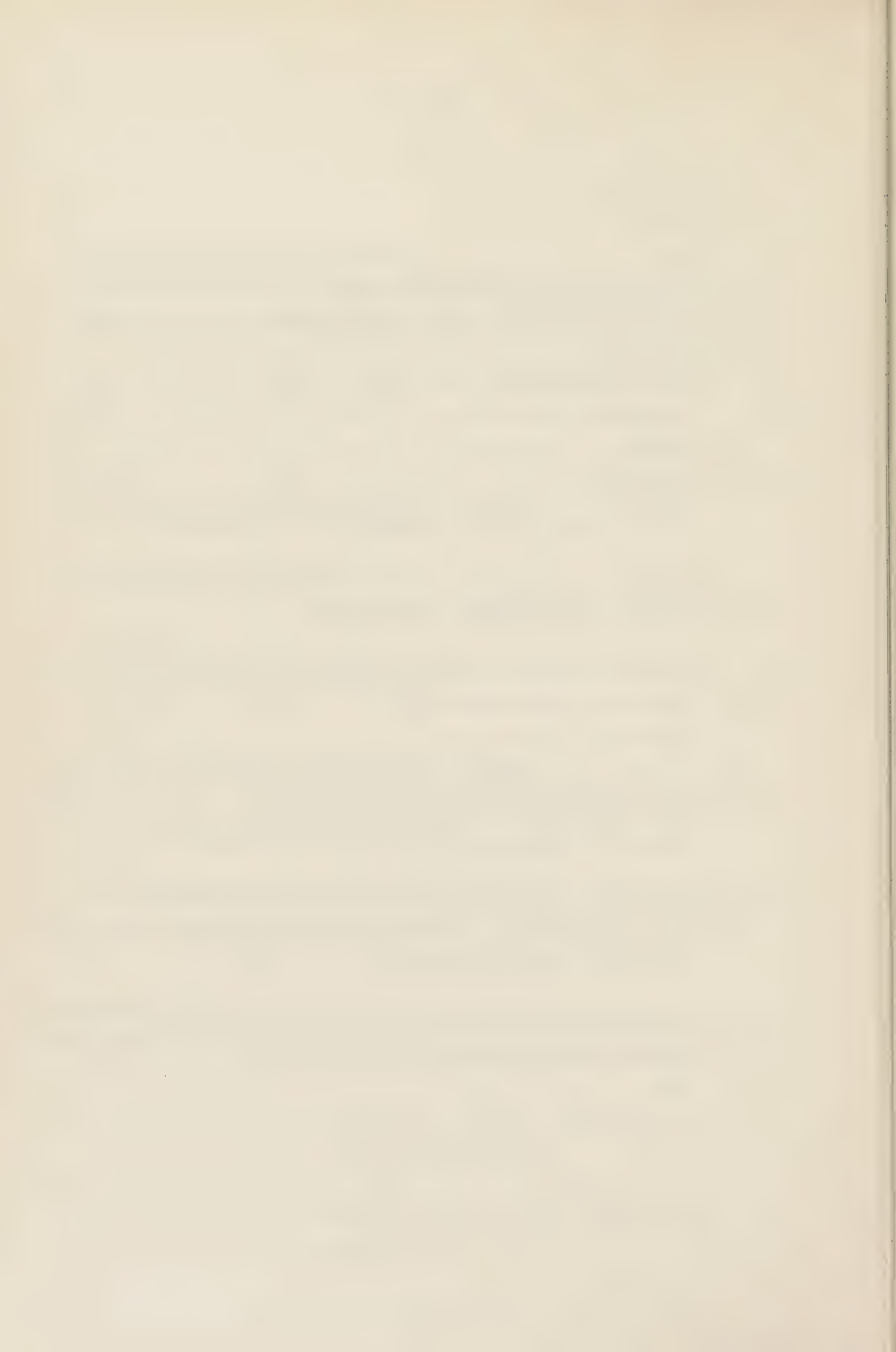
Den Herren B. Alder, H. Loosli, M. Wahlen und B. Stauffer danke ich für viele anregende Diskussionen.

Den Herren H. Steuri, P.Ruchti, P.Bucher und P.Horrisberger danke ich für die zuverlässige Mithilfe bei mechanischen und chemischen Arbeiten.

Ohne die ständige moralische Unterstützung durch meine Frau und ihre tatkräftige und vielseitige Mithilfe wäre ein Abschluss dieser Arbeit zum jetzigen Zeitpunkt nicht denkbar gewesen.

Den Organen der PTT - Kreisdirektion Thun, insbesondere Herrn R.Zuber, sei für ihr verständnisvolles Entgegenkommen während der Arbeiten im Eisstollen gedankt.

Die vorliegende Arbeit wurde finanziell unterstützt vom Schweizerischen Nationalfonds zur Förderung der wissenschaftlichen Forschung.



Curriculum Vitae

Am 8. Februar 1938 wurde ich in Wasen im Emmental geboren. Von 1945 bis 1949 besuchte ich die Primarschule in Heimberg und anschliessend die Sekundarschule in Steffisburg. Von 1954-1957 absolvierte ich eine Lehre als Möbelschreiner in den Lehrwerkstätten der Stadt Bern. Im Frühjahr 1959 bestand ich die eidg. Maturitätsprüfung Typus C und immatrikulierte mich anschliessend an der philosophisch-naturwissenschaftlichen Fakultät der Universität Bern. Im Februar 1964 erwarb ich das Lizentiat mit Physik im Hauptfach und Mathematik und Astronomie in den Nebenfächern. Seit Dezember 1962 bin ich als Assistent von Herrn Prof. Dr.H.Oeschger am Physikalischen Institut der Universität Bern tätig. Unter seiner Leitung entstand die vorliegende Arbeit.

